

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2004-182959

(43)Date of publication of application : 02.07.2004

(51)Int.Cl.

C09J183/04
C09J 5/06

(21)Application number : 2002-382933

(71)Applicant : SFC:KK

(22)Date of filing : 03.12.2002

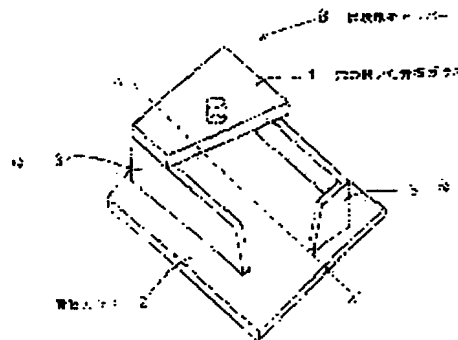
(72)Inventor : YAMANO KIYOSHI
ABE HIDEO
TANAKA YASUHIITO

(54) ADHESIVE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an adhesive which is capable of maintaining a heat-resistant adhesion at high temperatures of 300 ° C or higher between a glass and a glass, a glass and a metal, and a glass and a ceramics each having different thermal expansion coefficients and which is capable of keeping the hermetic seal at a high temperature of 300 ° C.

SOLUTION: The adhesive has the main constituents of phenylheptamethylcyclotetrasiloxane and 2,6-cis-diphenylhexamethylcyclotetrasiloxane and is thermally curable at temperatures of 200-300 ° C.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

17.05.2005

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

BEST AVAILABLE COPY

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-182959

(P2004-182959A)

(43) 公開日 平成16年7月2日(2004.7.2)

(51) Int. Cl. ⁷

C09J 183/04

C09J 5/06

F1

C09J 183/04

C09J 5/06

テーマコード(参考)

4J040

審査請求 未請求 請求項の数 2 書面 (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願2002-382933 (P2002-382933)

(22) 出願日 平成14年12月3日(2002.12.3)

(特許庁注: 以下のものは登録商標)
テフロン

(71) 出願人 500357552

株式会社エス・エフ・シー

神奈川県横浜市中区日本大通11番地 横

浜情報文化センター12階

(72) 発明者 山野 清

神奈川県川崎市幸区神明町2-61-2

株式会社エス・エフ・シーテクノセンター

内

(72) 発明者 安倍 日出夫

神奈川県川崎市幸区神明町2-61-2

株式会社エス・エフ・シーテクノセンター

内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 接着剤

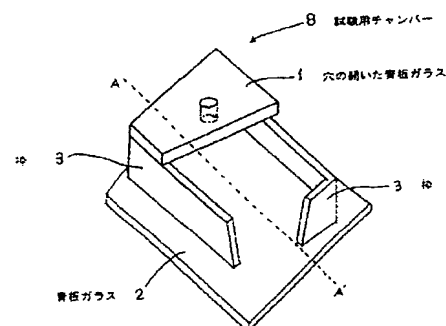
(57) 【要約】

【課題】熱膨張係数の異なるガラスとガラス、ガラスと金属及びガラスとセラミックス等の300℃以上の高温における耐熱接着性が維持でき、かつ300℃の高温において気密漏洩性を保持することのできる接着剤を提供する。

【構成】フェニルヘプタメチルシクロテトラシロキサン及び2,6-シス-ジフェニルヘキサメチルシクロテトラシロキサンを主たる構成成分とし、200℃～300℃の温度で熱硬化する構成とした。

【選択図】

図1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

少なくともフェニルヘプタメチルシクロテトラシロキサン及び 2, 6-シスージフェニルヘキサメチルシクロテトラシロキサンを含むシリコンレジンからなることを特徴とする接着剤。

【請求項 2】

請求項 1 記載の接着剤において、200℃～300℃の温度で熱硬化することを特徴とする接着剤。

【発明の詳細な説明】**【0001】**

10

【産業上の利用分野】

本発明は、ガラス部材等をガラス、金属およびセラミックス等に接合するのに適した接着剤に係り、特に300℃以上の耐熱性を有し、かつガス発生の少ない接着剤に関するものである。

【0002】**【従来の技術】**

従来、ガラスとガラスを貼り合わせた部材は、防音性、断熱性に優れているため建築用窓ガラス、乗物用窓ガラス、冷凍庫用窓ガラス等に用いられている。

また、ガラスと金属板或いはガラスとセラミックスを接着した部材は、チップパッケージ用基板等に多く使用されている。この接着剤は、通常耐熱性が要求されることからエポキシ系高分子有機接着剤やガラスを含有したアルミナ、シリカを主成分とした耐熱性無機接着剤が用いられている。

20

【0003】

この耐熱性有機接着剤として、特開平9-71763号公報に示す耐熱性接着剤がある。この接着剤は、第1官能基を持つ珪素を中心とする第1有機珪素系層状高分子と、該第1官能基と反応して硬化させるエポキシ基を持つ第2官能基を持つ有機化合物からなる耐熱性接着剤であり、250℃以上の耐熱性を持つ有機接着剤である。

また、無機接着剤として、特開平11-116899号公報に示すものがある。この無機系接着剤は、接着成分が磷酸アルミニウムと窒化アルミニウムを重量比率で8:58~42:92の割合で含むことを特徴としている。この無機系接着剤は、耐熱性と放熱性に優れたものである。

30

【0004】**【発明が解決しようとする課題】**

しかしながら、上述した従来の有機系接着剤は、300℃以上の高温になると炭化現象が生じ、接着強度の低下、気密性の低下をきたし、絶縁部で用いている場合には絶縁破壊が生じたりして接着初期の接合の機能が低下してしまう場合があった。

一方、無機系接着剤の場合、アルミナやシリカを主成分としたものは分子と分子の結合に隙間が生じ真空状態を上げていくと接着面から漏れが発生し、200℃以上では望んだ気密状態を維持することが困難であった。

さらに、ガラスと金属、ガラスとセラミックス、熱膨張係数の異なるガラスとガラスを接着する場合、熱膨張係数が異なるとガラスが割れたり、接着面が剥離する現象が生じた。

40

【0005】

本発明は上述した従来の問題点に鑑みなされたもので、その目的とするところはガラスとガラス、熱膨張係数の異なるガラスとガラス、ガラスと金属或いはセラミックスを接着し、300℃以上の高温状態で耐熱性強度が維持でき、かつ300℃以上の高温において気密性を保持することのできる接着剤を提供するものである。

【0006】**【課題を解決するための手段】**

本発明者らは上記した問題点を解決するために鋭意研究を重ねた結果、ガラスとガラス、熱膨張係数の異なるガラスとガラス、ガラスと金属或いはセラミックスの接着剤として少

50

なくともフェニル基を有するシロキサン化合物を用いることにより、熱処理温度200℃～300℃の接着工程で300℃以上の耐熱性接着皮膜が得られ、かつ気密性に優れた接合面が得られることを知見して本発明に到達した。

【0007】

すなわち、本発明の接着剤は、フェニルヘプタメチルシクロテトラシロキサン及び／又は2, 6-シスージフェニルヘキサメチルシクロテトラシロキサンからなることを特徴としたものである。

また、本発明の接着剤は、200℃～300℃の温度で熱硬化することを特徴とするものである。

【0008】

【発明の実施の形態】

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明で使用する接着剤は、原料としてフェニルヘプタメチルシクロテトラシロキサン及び2, 6-シスージフェニルヘキサメチルシクロテトラシロキサンを用いこれをトルエン、キシレン、ソルベントナフサ等の有機溶媒に溶解し、100～150℃で2～5時間加熱し、溶媒を蒸発させながら縮合反応させ、反応生成物の粘度を100cps～1000cpsに調整することによって得られる。

【0009】

また、上記の接着剤をテフロンシート上に平滑に塗布し、乾燥、脱泡処理して厚さ500μmのシート状にした接着剤が最も好ましい例として用いられる。本発明ではフェニルヘプタメチルシクロテトラシロキサンと2, 6-シスージフェニルヘキサメチルシクロテトラシロキサンを主成分として用いた接着剤を上記の如くしてシート状接着剤にしたものが、従来の接着剤に比べて脱泡処理時の脱ガスが少なく、耐熱性に優れている。

【0010】

次に、本発明の接着剤を用いたガラス部材等接着方法の一例を挙げる。まず、任意の形状に成形したシート状接着剤を真空チャンバー中で約1Paに真空排気し、真空中で140℃に加熱し一度軟化させながら脱泡処理し、該シート状接着剤を一度大気中に取り出し、これを接着する部材と重ね合わせ、荷重を加えながら圧着し、更に300℃まで加熱し、接着剤を硬化することによって接着させる。本発明では特にフェニルヘプタメチルシクロテトラシロキサンと2, 6-シスージフェニルヘキサメチルシクロテトラシロキサンを主成分として用いた接着剤を上記の如くしてシート状接着剤にしたものが、従来の接着剤に比べて脱泡処理時の脱ガスが少なく、耐熱性に優れている。

【0011】

次に、本発明のペースト状接着剤を用いる接着方法を挙げると、まず、フェニルヘプタメチルシクロテトラシロキサンと2, 6-シスージフェニルヘキサメチルシクロテトラシロキサンを主成分とするペースト状接着剤をディスペンサーにより接着する部材に塗布した後、真空チャンバーに入れ約100Pa程度の減圧中で100℃に加熱しながら真空排気し、脱泡処理を行って一度大気中に取り出す。次いで、上記の部材の接着剤を塗布した部分に接合すべき別の部材を重ね合わせ、荷重を加えながら圧着し、更に大気中で200～300℃に加熱して接着剤を硬化させる。

【0012】

本発明に係るフェニルヘプタメチルシクロテトラシロキサンと2, 6-シスージフェニルヘキサメチルシクロテトラシロキサンを主成分とするペースト状接着剤は、上記のディスペンサー塗布以外にそれぞれディッピング、スプレー、スクリーン印刷等の公知のコーティング法で任意の形状にガラス部材等にコーティングし、脱泡し、溶媒を蒸発させたのち、熱処理により軟化させ、荷重を加えながら圧着し、降温過程で接着剤を硬化することによって接着させ、脱泡処理時の脱ガスが少なく、耐熱性に優れた接着部材を得ることができる。

上記脱泡処理の際の真空度は数Pa程度が好ましいが減圧であれば数千Paでも10～3Pa以下の高真空化でもよい。また、温度は安全性の面から120℃前後が好ましいが、

10

20

30

40

50

接着剤が硬化しない温度であればよい。

【0013】

【実施例】

以下、好ましい実施例を挙げて、本発明を更に詳述するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではなく、本発明の目的が達成される範囲内での各要素の置換や設計変更、工程順の変更がなされたものをも包含する。

【0014】

【実施例1】

フェニルヘプタメチルシクロテトラシロキサン1gとシリコンレジン5.9gをトルエン40gに溶解し、加熱しながらトルエンを蒸発させ、縮合反応させる。次いで、この反応生成物を図4に示す真空チャンバー6中のホットプレート7に移し、ホットプレート7を加熱しながら真空排気を行う。真空チャンバー6の真空度が100Pa程度で脱泡処理を行う。次いで、ホットプレート7を冷却しながら雰囲気は大気に戻し、粘度数百cPのペースト状接着剤を得た。この反応生成物を粘度約200cPに調整し、本発明の接着剤を得た。

【0015】

【実施例2】

フェニルヘプタメチルシクロテトラシロキサン1gと2,6-ジスージフェニルヘキサメチルシクロテトラシロキサン0.1g及びシリコンレジン5.9.8gをトルエン40gに溶解し、加熱しながらトルエンを蒸発させ、縮合反応させる。次いで、この反応生成物を図4に示す真空チャンバー6中のホットプレート7に移し、ホットプレート7を加熱しながら真空排気を行う。真空チャンバー6の真空度が1Pa程度で脱泡処理を行う。次いで、ホットプレート7を冷却しながら雰囲気は大気に戻し、粘度数百cPのペースト状接着剤を得た。このペースト状接着剤をテフロンシート上に平滑に塗布し、接着剤を冷却し、室温に戻して厚さ500μmのシート状の接着剤を得た。

【0016】

【実施例3】

図2に示すように、被着材として、厚さ2.8mm、30mm角のφ3mmの穴の開いた青板ガラス1と、厚さ2.8mm、30mm角の青板ガラス2と、厚さ2.8mmで外寸25mm、幅3mmの青板ガラス枠3を用いて接着試験用の資料を作成した。作成は接着剤として実施例1で得たペースト状接着剤を使用した。まず、図3に示すように、実施例1で得た接着剤4を青板ガラス枠3の上面に周辺を120℃に加熱したディスペンサー5を用いて接着剤を軟化させて塗布し、穴の開いた青板ガラス1と青板ガラス枠3を重ね合わせて仮接着させる。次に、接着剤4で仮接着した青板ガラスと青板ガラス枠3をベーク炉に入れ、1kgの重りを乗せ、500℃に加熱し、接着剤を硬化させ接着させる。冷却した後、同様の工程により青板ガラス枠3の上面に周辺を120℃に加熱したディスペンサー5を用いて接着剤4を軟化させて塗布し、青板ガラス2を接着し、漏洩試験試料として真空排気可能な図1に示す試験用チャンバー8を作成した。

【0017】

漏洩試験試料である試験用チャンバー8を室温にて図5に示すようなヘリウムリークディテクター（アルカテル）に接続し、ヘリウムガスを試験用チャンバー8周辺に吹きかけてリークチェックした結果、検出限界以下の真空気密性が確認できた。さらにこの漏洩試験試料を350℃まで加熱した後、再び室温にてリークチェックした結果、300℃加熱前と同様に検出限界以下の真空気密性が確認でき、300℃以上の耐熱性にも優れていることが確認された。

【0018】

【実施例4】

被着材として、厚さ2.8mm、30mm角のφ3mmの穴の開いた青板ガラスと厚さ2mm、30mm角のアルミニウム金属シート、厚さ1mmで外寸20mm、幅3mmのアルミナ製セラミックスの枠を用い、接着剤として実施例2で得たシート状接着剤を約1mm

mに裁断したものを接着剤として使用し、重りの代わりにクリップを用いた以外は実施例3と同様にして漏洩試験用試料を作成した。この漏洩試験用試料を実施例3と同様の方法で室温にてヘリウムリークディテクターでリークチェックしたところ検出限界以下の真空気密性が確認できた。

さらにこの漏洩試験用試料を350℃まで加熱したが、試料が割れることはなかった。再びリークチェックしたところ、300℃加熱前と全く変わらない検出限界以下の真空気密性が確認できた。この結果、青板ガラスと熱膨張係数の異なる、アルミナ製セラミックス及びAl製金属シートとの接着性にもすぐれているものであった。

【0019】

【比較例1】

10

実施例4と同様の漏洩試験用試料を作成した。但し、本比較例1においては、接着剤としてガラスフリットを用い、温度410℃で接着形成する工程を行った。得られた漏洩試験用試料を実施例1と同様の方法で室温にてヘリウムリークディテクターでリークチェックしたところ検出限界以下の真空気密性が確認できた。次いで、この試料をヘリウムリークディテクターに接続した状態で350℃まで加熱を試みたが、340℃付近で大きなリークが発生した。さらに室温まで冷却してもリークはなくなり、350℃においても真空気密性は満足されるものでなかった。

【0020】

【比較例2】

実施例1と同様の漏洩試験用試料を作成した。但し、本比較例2においては、接着剤としてポリスルホン系接着剤（商品名；ステイスティック301テクノアルファ（株）社製品）を用いた。ディスペンサー塗布法で任意の形状にガラス部材にコーティングし、脱泡し、150℃で溶剤を蒸発させた後、加熱処理温度300℃で作成した。

20

実施例1と同様の方法で室温にてヘリウムリークディテクターでリークチェックしたところ検出限界以下の真空気密性が確認できた。

さらに、この試料をヘリウムリークディテクターに接続した状態で350℃まで加熱を試みたが、300℃付近で大きなリークが発生した。室温まで冷却してもこのリークはなくなり、350℃における真空気密性は満足されるものでなかった。

【0021】

【発明の効果】

30

本発明の接着剤は、熱膨張係数の異なるガラスとガラス、ガラスと金属及びガラスとセラミックス等の300℃以上の高温における接着性に極めて優れている。また、350℃の高温においても気密漏洩性に優れているため、本発明の方法により接着した各種部材は、高温に曝される気密性部材としても有用である。

【図面の簡単な説明】

【図1】試験用チャンバーの一例を示す斜視図である。

【図2】図1におけるA-A断面図である。

【図3】ディスペンサーによる接着剤の塗布状態を示す平面図である。

【図4】真空チャンバーにおける脱泡、接着状態を示す断面図である。

【図5】実施例1で得た漏洩試験用チャンバーのリークディテクター試験状態を示す断面図である。

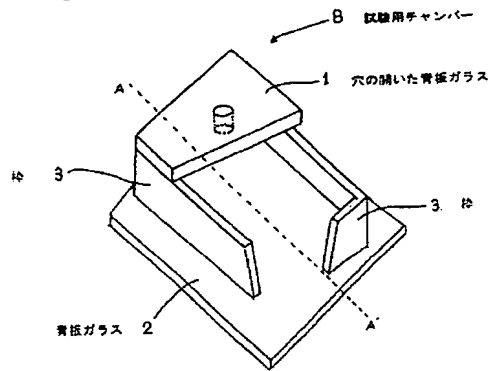
40

【符号の説明】

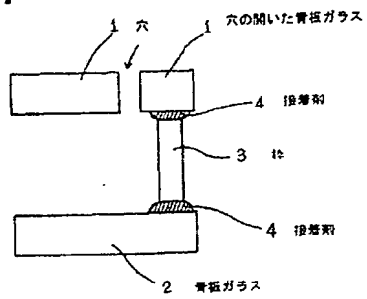
- 1 穴の開いた青板ガラス
- 2 青板ガラス
- 3 青板ガラス枠
- 4 接着剤
- 5 ディスペンサー
- 6 真空チャンバー
- 7 ホットプレート
- 8 試験用チャンバー

50

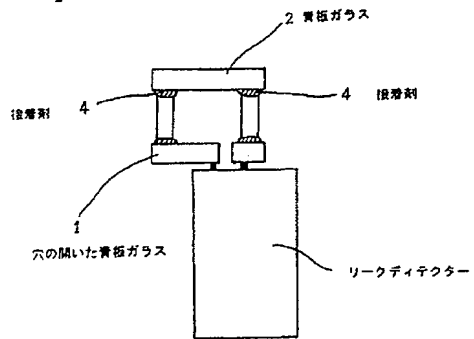
【図 1】



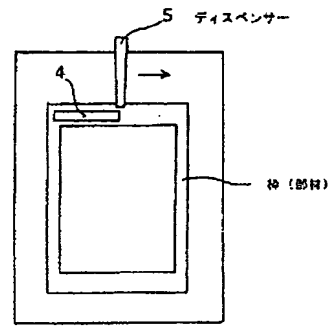
【図 2】



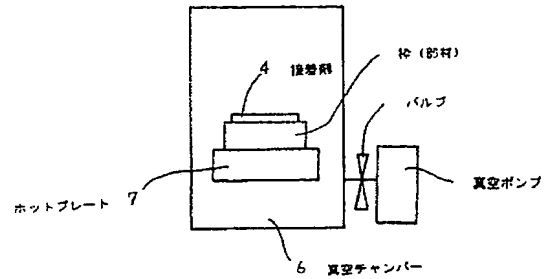
【図 5】



【図 3】



【図 4】



フロントページの続き

(72)発明者 田中 康仁

神奈川県川崎市幸区神明町2-6-1-2 株式会社エス・エフ・シーテクノセンター内

Fターム(参考) 4J040 EK031 JA05 LA06 LA08 MA02 MA04 MA05 PA30 PA35